



TITLE:

Removal mechanisms of pharmaceuticals and personal care products during soil aquifer treatment(Abstract_要旨)

AUTHOR(S):

He, Kai

CITATION:

He, Kai. Removal mechanisms of pharmaceuticals and personal care products during soil aquifer treatment. 京都大学, 2016, 博士(工学)

ISSUE DATE:

2016-09-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k19987>

RIGHT:

学位規則第9条第2項により要約公開; 許諾条件により本文は2020-10-01に公開

(続紙 1)

京都大学	博士（工学）	氏名	賀 凱
論文題目	Removal mechanisms of pharmaceuticals and personal care products during soil aquifer treatment（土壌浸透処理における医薬品類の除去機構）		
<p>（論文内容の要旨）</p> <p>本論文は、下水再生水の間接的飲用を目的とした土壌浸透処理による微量有機汚染物質の制御に関して、医薬品類の除去機構の観点から適切な土壌浸透処理の運転条件と、活性汚泥処理と土壌浸透処理の組み合わせの合理性について研究を実施した結果をまとめたものである。論文は6章で構成されている。</p> <p>第1章では研究背景と目的を述べている。地球規模の気候変動や都市への人口集中にともなう水不足を解決する一方策として下水処理水の再生利用の重要性を述べた上で、膜処理等エネルギー消費量の高い処理の代替法として土壌浸透処理に注目する意義、さらには土壌浸透処理における対象物質の物性と除去性や除去機構の関係等、都市の水再生利用システムに土壌浸透処理を組み込む上での課題を提示している。</p> <p>第2章では、文献考察により、土壌浸透浸透処理における微量汚染物質の除去機構を解明する上で、医薬品類が物性の多様性および検出頻度の観点から優れた指標物質群であることを指摘し、42種類の医薬品類を対象物質として選定している。さらに、土壌浸透処理に関する既存研究から、対象物質の物性と処理条件の関係を整理する意義について述べている。また、土壌浸透処理と活性汚泥処理とを併用することの妥当性の評価を重要な研究課題として抽出し、このための評価手法として、カフェインやプロピオン酸系非ステロイド性抗炎症薬（プロフェン類）の分解生成物からみた両処理法の比較を提案している。</p> <p>第3章では、土壌浸透処理による医薬品類の除去機構について論じた上で、その特徴を活性汚泥処理と比較している。除去機構について、滅菌を行った土壌カラムと非滅菌の土壌カラムを用いた連続試験の結果から、疎水性相互作用による吸着と生分解に加えて、静電相互作用も多くの医薬品類について土壌浸透処理における重要な除去機構であることを指摘している。さらに、一連の回分式試験により、土壌粒子表面に形成される生物膜も疎水性化合物の吸着に寄与し得ること、土壌表面の生物膜は活性汚泥よりも医薬品類の吸着能が高いことを示している。また、長期カラム実験後の土壌と活性汚泥を用いて回分式試験を行い、医薬品類の分解速度を比較した結果、易分解性の化合物については、活性汚泥による分解速度の方が速いものの、処理システムとしては土壌浸透処理の方がより多様な医薬品類を分解できることを明らかにしている。また、分子構造と生分解性の関係について、分子内にカルボキシル基を含む物質は生分解が高い一方で、アミド結合、芳香環、ハロゲンを含む化合物は生分解性が低い傾向を見出している。これらの結果から、土壌浸透処理は活性汚泥処理に比べて多様な微量汚染物質に対応できる処理であり、活性汚泥処理との併用は合理的であると結論している。</p> <p>第4章では、土壌浸透処理の運転条件と医薬品類の除去性との関係について、長期カラム実験およびパイロットプラント実験に基づいて論じている。まず、土壌の物性に関して、真砂土のように陽イオン交換能、有機物含有量、比表面積の大きい場合に</p>			

京都大学	博士（工 学）	氏名	賀 凱
<p>フルオロキノロン類やマクロライド系抗生物質の吸着による除去効率がある程度高まるが、土壌の物性と医薬品類の生分解性の間には明確な関係が見られないことを示している。また、水理学的滞留時間については、ほとんどの対象物質については7日間で充分であり、一部の難分解性物質についてはそれ以上処理時間を延長しても除去率は改善しないことを明らかにした。さらに、不飽和層の存在はスルファメトキサゾールなど限られた一部の難分解性物質の除去率向上には効果があるものの、ほとんどの対象物質については飽和条件下での除去率との間に差はないことを示している。以上のことから、土壌浸透処理による微量汚染物質の除去は、不飽和層の有無によらず数日間から一週間程度の比較的短期間の処理が適切であると結論している。</p> <p>第5章では、回分式実験とカラム実験により、カフェインとプロフェン類の主要代謝物について、土壌浸透処理および活性汚泥処理における消長を比較している。土壌浸透処理においてはカフェインの脱メチル化の主要経路は、テオフィリン、1-メチルキサンチン、キサンチンの順であることを速度論的解析に基づき明らかにし、活性汚泥処理における反応経路とは異なることを示している。さらに、プロフェン類に対する生分解において、土壌浸透処理は活性汚泥処理に比べてより多様な脱メチル化反応と水酸化反応を示すことを明らかにしている。以上のことから、土壌浸透処理と活性汚泥処理を組み合わせることで、より多様な生分解反応が期待できること、すなわち活性汚泥処理と土壌浸透処理の組み合わせによる水再利用システムは微量汚染物質制御の観点から合理的であることを指摘している。</p> <p>第6章は結論であり、各章で得られた成果、および今後の課題について要約している。</p>			

氏 名	賀 凱
-----	-----

(論文審査の結果の要旨)

本研究は、土壌浸透処理を用いた下水再生水の間接的飲用における微量有機汚染物質の制御に着目し、活性汚泥処理と土壌浸透処理による医薬品類の除去機構および分解産物を比較することで微量有機汚染物質の制御における活性汚泥処理と土壌浸透処理の組み合わせの妥当性について議論し、さらに微量有機汚染物質制御に適した土壌浸透処理の運転条件を明らかにすることを目的として行ったものである。得られた主な成果は以下の通りである。

1. 土壌浸透処理における医薬品類の除去機構として、土壌粒子表面との疎水性相互作用と生分解に加えて、静電相互作用や土壌粒子表面に形成される生物膜への吸着も寄与していることを明らかにした。さらに、生分解しやすい化合物の特徴としてカルボキシル基を有すること、逆に生分解性が低い化合物はアミド結合、芳香環、ハロゲンを有する傾向があることを示した。
2. パイロットプラント試験とカラム実験により、医薬品類の除去に対する土壌の種類、水理学的滞留時間、不飽和層の有無の影響について評価した。その結果、比較的短い滞留時間（約 7 日間）による処理で対象とした医薬品類の除去がほぼ達成できることを示し、化学物質制御の観点からは短時間の土壌浸透処理が十分有効であることを指摘した。
3. カフェインとプロピオン酸系非ステロイド性抗炎症薬（プロフェン類）の主要代謝物について、土壌浸透処理と活性汚泥処理との比較を行い、土壌浸透処理においてはカフェインの脱メチル化の主要経路は活性汚泥処理とは異なること、プロフェン類に対する生分解において土壌浸透処理は活性汚泥処理に比べてより多様な脱メチル化反応と水酸化反応を示すことを示し、土壌浸透処理と活性汚泥処理を組み合わせることで、より多様な生分解反応が期待できることを明らかにした。

以上、本論文は、微量有機汚染物質制御の観点から土壌浸透処理を含む水再利用システムの合理的デザインに大きく貢献するものと判断され、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 28 年 8 月 24 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。なお、本論文は、京都大学学位規程第 14 条第 2 項に該当するものと判断し、公表に際しては、当該論文の全文に代えてその内容を要約したものとすることを認める。